

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**



UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re the Application of: **Masaakira HORINO**

Serial No.: **09/895,328**

Group Art Unit: **1612**

Filed: **July 2, 2001**

For: **SEBUM-ADSORBENT POWDER AND USE THEREOF**

CLAIM FOR PRIORITY UNDER 35 U.S.C. 119

Commissioner for Patents
Washington, D.C. 20231

Date: **October 12, 2001**

Sir:

The benefit of the filing date of the following prior foreign application is hereby requested for the above-identified application, and the priority provided in 35 U.S.C. 119 is hereby claimed:

JAPANESE APPLICATION NO. 2000-204587, Filed July 6, 2000

In support of this claim, the requisite certified copy of said original foreign application is filed herewith.

It is requested that the file of this application be marked to indicate that the applicant has complied with the requirements of 35 U.S.C. 119 and that the Patent and Trademark Office kindly acknowledge receipt of a said document. In the event that any fees are due in connection with this paper, please charge our Deposit Account No. 01-2340.

Respectfully submitted,

**ARMSTRONG, WESTERMAN, HATTORI,
McLELAND & NAUGHTON, LLP**

Stephen G. Adrian
Reg. No. 32,878

Atty. Docket No. 010830
1725 K Street, N.W., Suite 1000
Washington, DC 20006
Tel: (202) 659-2930
Fax: (202) 887-0357
SGA/II

TECH CENTER 600/2900

OCT 12 2001

RECEIVED

#3
2.2.
10/18/01

RECEIVED

OCT 17 2001

TECH CENTER 1600/290



日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application:

2000年 7月 6日

出 願 番 号

Application Number:

特願2000-204587

出 願 人

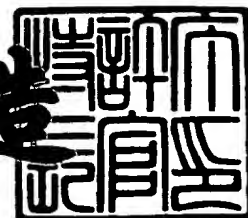
Applicant(s):

三好化成株式会社

2001年 6月 7日

特 許 庁 長 官
Commissioner,
Japan Patent Office

及 川 耕 造



出証番号 出証特2001-3053244

【書類名】 特許願

【整理番号】 P6785GN

【提出日】 平成12年 7月 6日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 A61K 7/00

【発明者】

 【住所又は居所】 神奈川県相模原市大野台 1-23-12

 【氏名】 堀野 政章

【特許出願人】

 【識別番号】 597137213

 【氏名又は名称】 三好化成株式会社

【代理人】

 【識別番号】 100080816

 【弁理士】

 【氏名又は名称】 加藤 朝道

 【電話番号】 045-476-1131

【手数料の表示】

 【予納台帳番号】 030362

 【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

 【物件名】 明細書 1

 【物件名】 図面 1

 【物件名】 要約書 1

 【包括委任状番号】 0009683

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 皮脂吸着性粉体及びその使用

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

化粧料の粉体に使用可能な基体と、ハイドロキシアパタイトと、酸化亜鉛とを含有することを特徴とする粉体。

【請求項 2】

化粧料の粉体に使用可能な基体と、該基体の表面に被覆されたハイドロキシアパタイトと、該ハイドロキシアパタイトの被覆層に固着する酸化亜鉛とを含有することを特徴とする粉体。

【請求項 3】

化粧料用である請求項 1 又は 2 記載の粉体。

【請求項 4】

皮脂成分吸着性を有する請求項 1 又は 2 記載の粉体。

【請求項 5】

基体が無機粉体を含み、粘土鉱物、金属水酸化物、金属酸化物、及びこれら複数の複合体並びにこれら 1 種以上と有機粉体との複合体の何れかを含有する請求項 1 又は 2 記載の粉体。

粘土鉱物は合成物でもよい。

【請求項 6】

酸化亜鉛が低結晶性酸化亜鉛及び非晶質酸化亜鉛の少なくとも 1 種を含む請求項 1 又は 2 記載の粉体。

【請求項 7】

酸化亜鉛が、シェラーの式で求めたときに大きくとも 1000 Å の結晶サイズを有する請求項 1、2 又は 6 記載の粉体。

【請求項 8】

基体が、薄片状、鱗片状、板状及び棒状の何れかの形状を含む請求項 1 又は 2 記載の粉体。

【請求項 9】

基体の平均粒子径が 0. 1 ~ 6 0 0 μ m であり、酸化亜鉛の平均粒子径が 0. 0 1 ~ 1 μ m である請求項 1 又は 2 記載の粉体。

【請求項 1 0】

基体、ハイドロキシアパタイト及び酸化亜鉛の全重量に対し、ハイドロキシアパタイトを 2 ~ 5 0 % (重量) 含有し、酸化亜鉛を 2 ~ 8 % (重量) 含有する請求項 1 又は 2 記載の粉体。

【請求項 1 1】

請求項 1 ~ 4 何れか記載の粉体を含有することを特徴とする化粧品。

【請求項 1 2】

当該粉体を 0. 0 1 ~ 5 0 重量% 含有する請求項 1 1 記載の化粧品。

【請求項 1 3】

請求項 1、2 又は 4 記載の粉体を含有することを特徴とする皮脂吸着剤。

【請求項 1 4】

請求項 1、2 又は 4 記載の粉体を含有することを特徴とする体臭消臭剤。

【発明の詳細な説明】

【0 0 0 1】

【発明の属する技術分野】

本発明は、皮脂吸着性において特に優れた新規粉体及びそれを使用した化粧品、皮脂吸着剤、体臭消臭剤等に関する。更に詳しくは、本発明の粉体は化粧料の粉体に使用可能な基体と、ハイドロキシアパタイトと、酸化亜鉛とを含有し、好ましくは該基体の表面をハイドロキシアパタイトで被覆し、更にその表面に酸化亜鉛を固着した被覆物を含み、特に化粧品、皮脂吸着剤、体臭消臭剤等に適しており、これを使用して化粧品、皮脂吸着剤、体臭消臭剤等を提供することができる。

【0 0 0 2】

【従来の技術】

皮膚から分泌される皮脂は正常に角化している肌の角層にエモリエント効果を付与し、更に外部からの有害物質や細菌の浸入を防ぎ体内からの水分等の物質の放出を制御している。しかし、過剰な皮脂の分泌は皮膚に塗布された化粧膜の経

時変化による「むら」、「てかり」、「よれ」、「くすみ」、「消失」等の諸現象をもたらす「化粧くずれ」の原因にもなる等の欠点を有すると共に大気中の酸素により過酸化物を生成する原因にもなる。過酸化物の生成は光劣化油脂と同様で、これらの刺激物が皮膚に浸入すると炎症や、角化異常を起こしたり、シミ、ソバカスの原因になるので、肌に負担をかけずに肌の安全性を配慮した皮脂の効果的処理のための技術開発が望まれている。

【 0 0 0 3 】

既に、化粧持ちを良くする視点からの種々検討がなされて来ている。例えば、多孔質シリカ、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、結晶性セルロース等の高吸水性、吸油性の物質を化粧料に配合した場合、肌上の水分や皮脂成分を吸着してしまい、肌のエモリエント成分が不足し、肌の乾燥感やつっぱり感、更には肌のかゆみをひき起こす。この現象は、特にドライスキンやノーマルスキンの肌に多く、中でも特にオフィス業務等で、汗や皮脂があまり分泌し難い環境で生活する人々に発生し易い。オイリースキンにこれらの物質を適用した場合、これらの物質は過剰の皮脂や化粧料中に配合されている油分による濡れ現象の進行により光沢を呈し、化粧仕上りで「てかり」現象が出てくる欠点がある。

【 0 0 0 4 】

化粧持ちをより向上させるためにフッ素処理粉体を配合した化粧料が提案されているが、これらを用いた化粧料は皮脂や、汗に濡れないものの撥水、撥油性が強いため、皮膚脂上で粉体が上滑りして化粧膜が「よれる」という現象が見られ、メイクアップ効果を損なうことになる。

【 0 0 0 5 】

シリコーン処理粉体を用いた化粧料は撥水性が高く、耐汗性、耐水性も有している。しかしながら、シリコーン油や、粉体の表面処理に適用されるシリコーン油、またその誘導体は基本的にシリコーン油の持つ基本構造に由来し、耐油性が低い。そのためにオイリースキンでは過剰な皮脂の分泌により顔全体が化粧くずれを起こしたり、ノーマルスキンでは顔面のTゾーンやVゾーンの化粧くずれが避けられず、故に皮脂の分泌による化粧くずれの防止は難しい。

【 0 0 0 6 】

化粧持ちの向上を図るために皮膜形成高分子の活用がある。その代表的な物質として、アクリル-シリコン系グラフト重合体が提案されている。これは、分子鎖片末端にラジカル重合性を有するジメチルポリシロキサン化合物とアクリレート又はメタアクリレートを主体とするラジカル性重合モノマーとをラジカル重合により製造され得るもので、耐水、耐油性に優れた化粧膜を形成し非水系ファンデーションに実用化されている。しかし、これらを用いた化粧料は肌の閉塞性という観点から、肌表面の健康な生体反応を考慮すると皮膚生理面で課題を残している。また、皮膚形成能を有効的に利用できないパウダー製品においては化粧持ちの向上が図り難いという欠点がある。

【 0 0 0 7 】

更に、基体にアモルファス（非晶質）状酸化亜鉛を被覆した酸化亜鉛被覆物が提案され、脂肪酸固化能を損うことなく延展性が良い粉体及びそれを用いた皮膚外用剤が報告されている（特開平 9 - 2 2 7 7 9 2 号公報参照。）。しかしながら、この酸化亜鉛被覆物のオレイン酸吸着量は通常多孔質シリカの場合と略同程度であり、格別遊離脂肪酸の吸着に優れているものではない。また、人工皮脂の吸着量も多孔質シリカピースよりも低く、更には脂肪酸固化時間が略 3 0 分も要することから、特に脂性肌や超脂性肌への対応が困難という欠点を有している。

【 0 0 0 8 】

一方、粘土鉱物の層間に 1 種乃至は 2 種以上の酸化物及び／又はそれらの水酸化物を包接した化合物か遊離脂肪酸のみを選択的に吸着する層間金属包接化合物が報告されている（特開平 1 0 - 8 7 4 2 0 号公報参照。）。この素材は水膨潤性粘土鉱物を使用し、ソル状態中での反応で製造され、その実施例の記載からも理解されるように希薄な溶液での反応が行われる。そのために、この方法はバッチ当りの製造コストが高くなり、経済的に非常に不利である。更には、ソル状態で反応を行うために、脱液、洗浄、乾燥の通常の工程では洗浄が極めて遅く、多大な時間の浪費のみならず、得られた製品が非常に強い凝集を起こし、期待した性能が得られず、凍結乾燥が必須条件であり非常にコスト高になるという欠点もある。また、粘土鉱物の層間に A L のピラーを形成させるが、このときの粘土鉱

物のロットブレやピラーの生成状態により、インターカレートされる酸化物又は水酸化物の含量のバラツキが大きく、常に安定した品質が得られ難いといった欠点を有している。

【0009】

また、化粧料中に含めて、或いはこれとは別に使用する体臭を吸収、吸着、固化或いは固定化する物質（剤）、即ち体臭消臭剤の開発も求められている。

【0010】

以上のような状況下に、遊離脂肪酸（特に不飽和脂肪酸）や分泌する皮脂を処理して化粧持ちを向上し前記従来品の欠点を改善でき、皮脂の吸着の他に抗菌効果や、体臭消臭効果を併せ持ち、更に化粧料では特に肌に清潔性や安全性を保持し、肌に優しい好適な粉体の開発が求められている。

【0011】

【発明が解決しようとする課題】

本発明はこのような状況下に鑑み、遊離脂肪酸（特に不飽和脂肪酸）を特異的に吸着すると共に分泌する皮脂をも吸着、固化或いは固定化させ、固体膜を形成させることにより皮膚生理を阻害せず、素肌表面と同じ反射光曲線を持ち、素肌感を有し化粧持ち効果と抗菌効果に優れ、更には消臭効果をも併せ有する化粧料等に好適な素材を提供することを課題とする。

【0012】

【課題を解決するための手段】

本発明者等は前記課題を解決すべく鋭意研究を重ねた結果、化粧料の粉体中使用可能な基体と、ハイドロキシアパタイトと、酸化亜鉛とを含有する粉体、好ましくは該基体の表面にハイドロキシアパタイトを被覆し、更に該ハイドロキシアパタイトの被覆層、特にその表面に酸化亜鉛、特に好ましくは低結晶性酸化亜鉛（及び／又は非晶質酸化亜鉛）を固着した被覆物にそのような優れた作用があることを見出した。更に、この粉体は皮脂吸着性に優れる（特に、不飽和脂肪酸や皮脂の吸着量が高く、その固化時間が短いという特徴を示す。）他に抗菌効果や、体臭成分を吸着する特性も有していることが見出され、このような種々の知見に基づいて本発明が完成されるに至った。

【 0 0 1 3 】

即ち、本発明は化粧料の粉体に使用可能な基体と、ハイドロキシアパタイトと、酸化亜鉛とを含有することに特徴を有する粉体、好ましくは化粧料の粉体に使用可能な基体と、該基体表面に被覆されたハイドロキシアパタイトと、該ハイドロキシアパタイトの被覆層に固着する酸化亜鉛とを含有することに特徴を有する粉体に存する。即ち、更に、当該粉体は化粧料用の粉体に好適であり、この結果これを配合する化粧料や、またその他の分野にも適用可能である。例えば、皮脂成分を吸着する特性や体臭を消臭する効果を有するのでこれを含有する皮脂吸着剤や体臭消臭剤等にも使用可能であり、これらも本発明に含まれる。

【 0 0 1 4 】

尚、本発明の粉体においては、上記構成を有する前記三成分（基体、ハイドロキシアパタイト及び酸化亜鉛）を含んでおればよく、本発明で得られる効果を有する限り、また本発明の目的を阻害しない限り、更に他の成分を含んだり、他の構成を含むことができる。これらも当然のことながら本発明の粉体に含まれる。

【 0 0 1 5 】

尚、皮脂吸着剤とは動物、特にヒトの皮脂を吸着し、或いは固化、固定化するために使用する物質（剤）である。また、体臭消臭剤は、動物、特にヒトの皮膚を介し、或いは表皮細胞に由来して発生する不快な臭い（汗や微生物の作用等による）等のために臭いを発する成分の少なくとも1種を吸収、固化、固着し、臭いを減じるために使用する物質である。特に体臭消臭剤については、皮膚化粧料中に当該粉体を配合して使用する場合と、化粧料とは別にその目的のために配合して使用する場合とが存在する。

【 0 0 1 6 】

本発明において体臭成分には動物、特にヒトの体から発する広い概念の体臭成分が含まれる（伊崎誠一，体臭とは何か－その原因と予防，FRAGRANCE JOURNAL，1990-7，P.22-26(1990)；山村雄一，体臭，“現代皮膚科学大系2B”全身と皮膚2，山村雄一，久木田淳，佐野栄春，清寺真編，中山書店，東京，1981，163等参照。）。

【 0 0 1 7 】

【発明の実施の形態】

以下、本発明の実施の形態について詳細に説明する。

本発明の粉体は化粧料の粉体に使用可能な基体と、ハイドロキシアパタイトと、酸化亜鉛とを含有する粉体であるが、特に好ましいものとしてこれらの成分を含み被覆物の形態にある複合粉体を挙げることができる。以下、この被覆物を中心に説明するが、本発明の粉体はこれを含むが、これに限定されることはない。

【0018】

(本発明の被覆物(複合体))

本発明の被覆物は、基体の表面にハイドロキシアパタイトを被覆し、更にその被覆層、好ましくはその表面に酸化亜鉛を固着させるという基本構成を有している。酸化亜鉛として、好ましくは低結晶性酸化亜鉛又は非晶質酸化亜鉛やその混合体を使用し、これを上記ハイドロキシアパタイト層に固着して構成した被覆物であり化粧料に特に有用な被覆物である。ここで、基体とは化粧料に使用可能な粉体であり、この中には無機及び有機粉体が含まれ、無機-無機、有機-有機、無機-有機等の各種複合粉体の形態でも使用される。無機粉体としては粘土鉱物や金属酸化物、金属水酸化物や、これらを含んだ複合体を挙げることができ、また、これら1種以上と有機粉体との複合体も挙げることができる。有機粉体としては、各種化粧料の基体に使用可能な有機粉体を使用することができる。また、前記粘土鉱物には当然のことながら天然品や合成粘土鉱物も含まれる。更に、これら有機粉体と無機粉体の複合体、即ち有機-無機複合粉体も使用可能である。これらの粉体は、化粧料等に使用する場合、その1種又は2種以上を併用することができることは言うまでもない。

【0019】

その粒子形状には特に制限は無い。例えば、薄片状、鱗片状、板状、球状、紡錘状、X状、星形状、花卉状、ヒトデ状、リボン状、針状、半球状、棒状等、各種の形状が挙げられる。素肌表面と同じ反射光曲線が得られ易い点で、薄片状、鱗片状、板状、棒状等の形状が特に好ましい。

【0020】

その基体に使用する粉体粒子の大きさとしては平均粒子径で表して、好ましく

は 0. 1 ~ 6 0 0 μ m 程度、より好ましくは 0. 3 ~ 1 4 0 μ m 程度、更に好ましくは 1 ~ 8 0 μ m 程度、最も好ましくは 2 ~ 5 0 μ m 程度である。

【 0 0 2 1 】

本発明において基体を使用する場合の粘土鉱物（合成物も含まれる。）としては、カオリナイト、デッカイト、ナクライト、ハロイドサイト、アンチゴライト、クリソタイル等のカオリン族、パイロフィライト、モンモリロナイト、ノントロナイト、サボナイト、ヘクトライト、ベントナイト等のスメクタイト族、セリサイト、白雲母、黒雲母、リチア雲母、金雲母、合成雲母、合成セリサイト等のイライト族、ケイ酸カルシウム、ケイ酸マグネシウム、ケイ酸アルミニウムマグネシウム等のケイ酸塩、タルク、蛇紋石等のマグネシウムシリケート族等やゼオライト（天然及び合成品を含む。）、その他トルマリン（電気石）等を挙げることができる。基体に金属酸化物を使用する場合、例えばシリカ、アルミナ、酸化チタン、酸化セリウム等の単一成分粉体や、その他オキシ塩化ビスマス、硫酸バリウム等が挙げられ、特に板状又は鱗片状の形状が望ましい。複合体の形態で使用することもできる。特に、複合酸化物としては、シリカー酸化チタン、シリカー酸化亜鉛、シリカー酸化チタン—シリカ、シリカー酸化セリウム—シリカ、シリカー酸化亜鉛—シリカ等のマルチレイヤー複合体、チタンマイカ、着色チタンマイカ、酸化チタン—硫酸バリウム、酸化チタン—タルク、酸化亜鉛—マイカ、酸化亜鉛—タルク、オキシ塩化ビスマス—マイカ等のパール顔料及びそれらの表面に水酸アルミニウム、酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、酸化マグネシウム、シリカ処理、硫酸バリウム処理したパール顔料や、酸化チタン内包 PMMA、酸化亜鉛内包 PMMA、酸化セリウム内包 PMMA 等の硬質カプセルが挙げられる。

【 0 0 2 2 】

基体として有機粉体を使用する場合の例としては各種化粧料に使用可能な粉体が挙げられ、例えばナイロンパウダー、ポリエチレンパウダー、ポリプロピンパウダー、ポリスチレンパウダー、酢酸ビニルパウダー、ポリメタアクリル酸エステルパウダー、ポリアクリルニトリルパウダー、セルロースパウダー等を使用することができる。有機—無機の複合粉体を使用する場合には、その例としてポリ

エチレンー酸化亜鉛、ポリエチレンー酸化チタン、ポリエチレンー水酸化アルミニウム、ポリエチレンー水酸化アルミニウムーPMMA等を挙げることができる。また、有機ー有機の複合粉体を使用する場合には、ナイロンーセルロースを採用することができる。

【0023】

本発明に使用するハイドロキシアパタイト (hydroxy apatite) は特に制約は無い。 $\text{Ca}/\text{P}=0.5\sim2.0$ (モル比) で、アパタイト構造を有する磷酸カルシウムと定義され (Fragrance Journal, p144-148, 1999年1月号参照。)、このような磷酸カルシウムを使用することができる。

【0024】

基体の表面を被覆するハイドロキシアパタイトは遊離脂肪酸、特に不飽和脂肪酸を特異的に吸着する作用がある。この遊離脂肪酸は皮脂固化能を殆んど有しないものの皮脂の融点を特異的に低下させる作用により化粧くずれ助長の一因になっていると推測される。ハイドロキシアパタイトは皮脂から分泌される遊離脂肪酸を吸着し、皮脂の融点の低下による化粧くずれの防止と、皮膚から分泌される皮脂の酸化により生成する過酸化物の吸着作用により肌を清潔に保つ役割を果たす。

【0025】

基体の表面を被覆したハイドロキシアパタイトは熱処理をすることにより、より結晶性度は高くなり、熱処理の温度が高ければ高い程その結晶性は高くなる。しかし、脂肪酸の吸着量は熱処理温度と逆相関にあるため、熱処理を施さない方が好ましい。

【0026】

使用するハイドロキシアパタイトとしては前記の通り制約は無いが、安全性の面で好ましくは $\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3(\text{OH})$ 、 $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2$ 、 $\text{Ca}_4(\text{PO}_4)_2\text{O}$ 、 $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6\text{F}_2$ 、 $\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2$ 等を挙げることができる。

【0027】

適用されるハイドロキシアパタイトの被覆量については、本発明品の粉体全組成の重量、特に基体、ハイドロキシアパタイト及び酸化亜鉛の全重量に対して好

ましくは2-50重量%程度、より好ましくは5-30重量%程度、更に好ましくは10-20重量%程度ハイドロキシアパタイトを使用することができる。被覆量が2%未満の場合では吸着量が少な過ぎ肌を清潔に保持するのに不十分である。また、50重量%を超えて被覆しても、被覆した割合に対して吸着量の増加が期待できないばかりか肌上での滑りが悪くなり好ましくない。被覆層の厚みについては特に制限は無いが、好ましくは0.05~4 μm 程度、より好ましくは0.1~2 μm 程度である。

【0028】

基体表面にハイドロキシアパタイトを被覆した後、ハイドロキシアパタイト被覆層、例えばその表面に酸化亜鉛を固着させる。固着する酸化亜鉛として結晶性が高い酸化亜鉛は遊離脂肪酸の吸着量が低く、皮脂を固化させる皮脂固化能も低いので、使用する酸化亜鉛としては、低結晶性酸化亜鉛又は非晶質酸化亜鉛或いはその混合物を使用するのが好適である。その粒子径としては、平均粒子径で表して、好ましくは0.01~1 μm 程度、より好ましくは0.03~0.5 μm 程度、更に好ましくは0.05~0.1 μm 程度である。

【0029】

尚、低結晶性酸化亜鉛において「低結晶性」とは、小さな結晶の無数の乱雑な配向の中で結晶面が綺麗に並んでいない状態を云う。一つ一つの微結晶の色々な配向（並び方）と結晶サイズの大きさによりX線回折ピークの幅が決まってくる。結晶サイズが大きい場合には、光散乱が小さく、逆に結晶サイズが小さい場合にはピークの幅がブロードになる。結晶サイズはシェラー（Scherrer）の式で求めることができる。この式においては、数値が1000Åを超えるとその信頼性は欠けてくるが、低結晶性酸化亜鉛は結晶性酸化亜鉛と比較して明らかに結晶サイズが小さいことが分かる。

（Scherrerの式）

$$L = (K\lambda) / (\beta_0 \cos \theta_B)$$

L：結晶サイズ[Å]；

K：定数（=1.0）；

λ ：X線の波長（=1.5406Å）；

θ_B : ブラッグ角 ;

$$\beta_0 = (\beta_E^2 - \beta_I^2)^{1/2};$$

β_E : 見かけの半値幅 (実測値) ; 及び

β_I : 装置定数 ($=1.75 \times 10^{-3} \text{rad.}$) 。

酸化亜鉛の結晶サイズ (L) を求めた結果は次の通りである。

試 料	H	K	L	2THETA/DEG.	HALF WIDTH/DEG.	L (Å)
結晶性酸	1	0	0	10.83	0.12	1562.5
化亜鉛	0	0	2	25.86	0.13	1091.1
低結晶性	1	0	0	10.79	0.46	196.3
酸化亜鉛	0	0	2	25.84	0.20	541.4

解析には酸化亜鉛の (1 0 0) 面と (0 0 2) 面を用い、結晶サイズはこの面に垂直な方向の大きさを表している。低結晶性酸化亜鉛では (1 0 0) の方向よりも (0 0 2) の方向の方が結晶サイズが大きい。結晶性酸化亜鉛ではこの傾向が逆転し、(1 0 0) の方向に大きく成長している。

【 0 0 3 0 】

結晶性酸化亜鉛と低結晶性酸化亜鉛を比較した場合、結晶サイズにおいて結晶性酸化亜鉛は1000Åを超えた値を示すのに対し、低結晶性酸化亜鉛は明らかに1000Å以下の値であり、結晶サイズが小さいことが分かる。

【 0 0 3 1 】

本発明において使用する低結晶性酸化亜鉛としては、前記結晶サイズで表すと、好ましくは大きくとも1000Å、より好ましくは20~1000Å、更に好ましくは30~1000Åである酸化亜鉛が好ましい。

【 0 0 3 2 】

非晶質酸化亜鉛について「非晶質」とは、結晶格子 (原子の周期的配列) が殆んど認められない固体の状態か、原子の周期的配列がある程度あってもX線回折像を与えないような固体と定義される。

【 0 0 3 3 】

皮脂組成は性別や年齢によっても異なるが、(株)資生堂の調査結果によれば

、女性の場合、遊離脂肪酸量：7-13%程度、スクワレン：11-17%程度、ロウ類：14-17%程度、トリグリライド：47-55%程度、ジグリセライド：3-5%程度、モノグリセライド：0.7-1.2%程度、ステリンエステル類：1.4-1.5%程度、遊離ステリン類：1.4-1.5%程度が含有されている。従って、化粧くずれを防止するには皮脂組成中の遊離脂肪酸の7-13%程度のみを吸着しても他の多くの皮脂成分が肌上に残留し、化粧くずれを防止するには不十分であり、分泌される他の皮脂成分をも吸着又は固化或いは固定化させ、皮脂の流動化を防止する必要がある。

【0034】

本発明の粉体は皮脂組成中の遊離脂肪酸を特異的に吸着し、皮脂の融点の低下を防止すると共に、他の皮脂成分であるジグリセライドやトリグリセライド、エステルに対する吸着作用と皮脂固化能との相互作用により、より高い遊離脂肪酸の吸着能とにより高い皮脂固化能を発揮することができ、この点で特に優れた特徴を有している。更に、本発明の粉体によれば強固な化粧膜を形成させ化粧くずれを防止する共に皮脂の酸化により生成する過酸化物の吸着と、抗菌力を有しているため、肌の清潔性を保持することができる。また、本発明により得られた化粧膜が透明性に優れ、かつ肌の分光曲線と同一パターンを示し、不透明感や白っぽい粉浮きした化粧の仕上がりにはならず、化粧効果面でも肌に密着感、素肌感を与え、使用感も、通常、化粧料に用いられる鱗片状粉体と同等のものである。

【0035】

本発明の粉体に使用される酸化亜鉛の量は、粉体の全組成（重量）中、特に基体、ハイドロキシアパタイト及び酸化亜鉛の全重量に対し好ましくは2-8重量%程度であり、より好ましくは3-7重量%程度であり、更に好ましくは4-6重量%程度である。2重量%未満では皮脂固化能が著しく低下し、また8重量%を超えると、相互作用により皮脂固化能が低下傾向を示すので、何れも好ましくない。

【0036】

本発明の被覆物（粉体）を製造する場合特に困難は無く、例えば下記の方法により製造することができる。

【0037】

基体を分散させた液体に酢酸カルシウムを加えて85℃で加温した後、水酸化ナトリウムと第二リン酸ナトリウムの混合溶液を加えpH値を9～10程度に調整する。その後、水酸化ナトリウム溶液を加えpH値を11～12程度に調整し85℃程度に保持し熟成する。熟成終了後、冷却し反応溶液を60℃程度に設定する。60℃になった時点で、5N水酸化ナトリウム溶液を加えpH値を12程度に調整し、次いで1M塩化亜鉛溶液及び5N水酸化ナトリウム溶液を同時滴下しながらpH値を12程度に保持する。その後、冷却し、濾過、水洗浄を繰り返して、120℃程度で16時間程度乾燥後、これを粉碎すると本発明の被覆物（粉体）を製造することができる。このようにして得られた本発明の被覆物は遊離脂肪酸を特異的に吸着すると共に他の皮脂成分をも吸着、固化させ使用感を損なうことなく、更に化粧持ち効果と肌の清潔性、素肌感、抗菌性に優れている。

【0038】

従って、化粧品や医薬品の製剤の原料に好適であり、中でも化粧持ちが良く肌の清潔性を維持し、素肌感が高いことから化粧料用原料として極めて有用である。また、皮脂吸着剤や体臭消臭剤としても使用することができる。

【0039】

（化粧料）

本発明の化粧料は、上記の本発明の被覆物（本発明の粉体）を含有することに特徴を有する。本発明の化粧料としては通常の化粧料として知られている剤型であれば、何れも特段の限定を受けずに適用することができる。このような化粧料としては、例えばクリーム、乳液、化粧水、サンカムローション等基礎化粧料、アンダーメイクアップ、ファンデーション、アイシャドウ、リップクリーム、ルージュブラッシャー、リップグロス、リップカラー等のポイントメイクアップ料、タルカムパウダー、カラミンローション、ベビーパウダー、ボディパウダー、消臭パウダー、フレグランスパウダー、フェースパウダー等のパウダー製品、その他頭髮製品に適用することができる。更に、濡れティッシュ、脂取紙、メイク落とし等にも適用することができる。特に、メイクアップ化粧料と基礎化粧料や、制汗用化粧料（特に、消臭用化粧料等）をより好ましく例示することができる。

。これは、本発明の被覆物には消臭効果や、抗菌性もあり、本発明の被覆物を化粧料に使用したときに遊離脂肪酸や皮脂成分の吸着力が高く、化粧持ちが良く、かつ素肌感に優れるためである。

【0040】

本発明の被覆物（粉体）を化粧料中に配合する場合、その配合量については、化粧料の種類に応じて適宜選択することができ、特に制限は無い。一般には、全化粧料中に好ましくは、0.01～50重量%程度、より好ましくは0.05～30重量%程度、更に好ましくは0.1～20重量%程度配合することができる。

【0041】

本発明の被覆物に加えて、通常の化粧料で用いられている成分を配合することができる。このような成分としては、ワセリン、マイクロクリスタリンワックス、セレシン、スクワラン、流動パラフィン等の炭化水素類、セタノール、ステアarylアルコール、オレインアルコール等の高級アルコール類、ステアリン酸、パルミチン酸、ベヘニン酸等の脂肪酸類、牛脂、オリーブ油類等のトリグリセライド類、ミリスチン酸オクチルドデシル、ジメチルオクタン酸ヘキシルデシル、ミリスチン酸イソプロピル等のエステル類、グリセリン、1,3ブチレングリコール等の多価アルコール類、非イオン界面活性剤、アニオン界面活性剤、両性界面活性剤、カチオン性界面活性剤、エタノール、その他カルボキシビニルポリマーやカルボキシメチルセルロースナトリウム等の増粘剤や防腐剤、紫外線吸収剤、抗酸化剤、色素、粉体類を例示することができる。

【0042】

（皮脂吸着剤）

本発明には皮脂吸着剤も含まれ、特にヒトの皮脂成分を吸着、固化或いは固定化する目的で使用する場合はこの発明に該当する。従って、上記化粧料もこの皮脂吸着剤に含まれる。化粧料とは別に制汗剤として使用することもできる。皮脂吸着剤に配合する前記粉体（被覆物）の含有量については適宜選択可能であり、化粧料以外に使用する場合でも前記化粧料での配合量が参考となる。

【0043】

(体臭消臭剤)

通常は、化粧品中に配合して、体臭等動物、特にヒトの皮膚を介して汗や微生物の作用等により発する不快な臭い成分を吸着、固化或いは固定化して臭いを減じることができる。本発明においてはこのように皮膚その他を通じて特にヒトの体から発する臭い成分の少なくとも 1 種を吸着、固化して臭いを減じるために使用する物質 (剤) である。化粧品への使用については前記説明の通りであるが、特に消臭剤或いは防臭剤として慣用され又は知られている処方 (大畠好博, 最近の体臭防止製品の動向と課題, FRAGRANCE JOURNAL 1990-7, P.61-69(1990)等参照。)を利用して行うことができる。本発明の粉体の配合量については、剤型等の種類により適宜選択することができるが、通常は前記化粧品において示した配合量が参考にされる。

【 0 0 4 4 】

【実施例】

以下、実施例及び比較例により本発明を詳細に説明する。

【 0 0 4 5 】

(実施例 1) 粉体の製造

反応容器中で、精製水 1 0 0 0 m l にセリサイト (平均粒子径: $8 \mu m$ 、板状晶) 9 5 g を分散させ、この分散液に酢酸カルシウム 3 2 . 4 g を加えて 8 5 °C まで加温した。8 5 °C になった時点で精製水 3 5 0 m l に水酸化ナトリウム 6 . 0 g とリン酸第二ナトリウム 1 5 . 9 g を溶解させた溶液を加えて p H 値を 9 . 4 に調整した。その後、これに精製水 2 0 0 m l に水酸化ナトリウム 1 . 3 5 g を溶解させた溶液を加えて p H 値を 1 1 . 4 に調整し、1 時間反応熟成を行った。熟成が終了した時点で、6 0 °C まで冷却し、1 M 塩化亜鉛溶液と 5 N 水酸化ナトリウム溶液を用い p H 値を 1 2 に保持しながら 1 M 塩化亜鉛 7 5 m l 滴下した。滴下終了した時点で冷却し、濾過、水洗浄を繰り返し実施し、1 2 0 °C で 1 6 時間乾燥後、粉碎し本発明の被覆物 (粉体) を製造した。

【 0 0 4 6 】

(実施例 2) 粉体の各種評価試験

(試験方法)

A. 各種油脂類及び人工皮脂の吸着量

300 ml のビーカーに試料 5.0 g を精秤し、油脂は人工皮脂の 50.0 g を精秤する。ここで、人工皮脂が半固体状であれば加温し完全に溶解して精秤する。各々精秤した試料をマグネチックスターラーで 30 分間強力に攪拌し、32℃の恒温室に 18 時間静置する。恒温室から試料を取り出し石油エーテル 100 ml を加え 30 分間攪拌した後、濾過する。この操作を 3 回繰り返す、80℃で乾燥した後、試料を精秤し、500℃で 4 時間保持、焼成し、その試料の減量分から吸着量を求めた。

【0047】

人工皮脂と疑似汗組成の混合系での人工皮脂の吸着量測定については、汗組成 (g) / 人工皮脂 (g) = 20 / 80 ~ 80 / 20 に対し試料 5.0 g を用いて前記同様に実施した。

【0048】

B. 脂肪酸固化能 (固化開始時間)

50 ml のビーカーにオレイン酸 3.6 g を精秤し、その中に試料 1.0 g を入れ、マグネチックスターラーで 10 分間強力に攪拌均一混合する。その混合液を静置し、試料の入ったビーカーを傾斜させ流動化するが、ビーカーを元の静置状態に戻した時、この傾斜した時の変形した形を保持した時までの時間を固化能 (固化開始時間) とした。

【0049】

C. 分光光度計による透明感 (素肌感)

腕の前腕屈折部を用いて面積 58 cm^2 を固定し試料 0.04 g を、ウレタンパフを用いて均一に塗布し、その時の分光反射光の反射率を測定した。また、同様に下地に乳液を塗布し、同一部所に試料 $0.03 \text{ g} / 58 \text{ cm}^2$ を塗布し同様に測定した (分光光度計 SZ-Σ90、日本電子製)。

【0050】

D. 動摩擦係数

カトーテック社製の摩擦感テスターを用い、感圧部と粉体表面を 3 往復させた時の値を求めた (摩擦感テスター KES-SE、カトーテック社製使用)。

【 0 0 5 1 】

E. 吸油量

ガラス板状に試料 5. 0 g をとり、皮脂類似成分としてスクワランを滴下しヘラで均一に練りながら、試料が一つの固まりとしてまとまったところを終点とし、その時までに滴下したスクワランの量をその試料の吸油量 (m l / 1 0 0 g) とした。

【 0 0 5 2 】

(各種粉体についての評価試験)

(1) 吸油量、比表面積、オレイン酸吸着量、人工皮脂吸着量及び脂肪酸固化 (オレイン酸固化開始時間)

測定結果を下記表 1 に示す。

【 0 0 5 3 】

【表 1】

試 料	吸油量 ml/100g	比表面積 m ² /g	オレイン酸吸着 量 mg/g	人工皮脂吸 着量 mg/g	固化 時間
セリサイト	8 7	7.8	7.3		×
結晶性酸化亜鉛	9 2	9.3	1 7.4		8 9 分
低結晶性酸化亜鉛	2 4 1	6 1.9	4 1 8.0		3 3 秒
ヘト・ロシバタイト	2 2 3	6 3.1	5 9.1		×
スメクタイト	6 2	2 2 8.3	1 3 7.9		×
ヘクトライト	4 9	3 4 0.3	1 7 5.0		×
ケイ酸アルミニウムマグネシウム	4 2 0	3 5 7.7	2 9 2.0		×
多孔質球状シリカ	1 4 7	3 0 5.4	7 1.5	6 5.3	×
酸化チタン(anatase 型)	4 8	1 2.0	0.7		×
特開平 9-227792 号公 報	9 5	8.7	7 3.3	4 0.0	3 2 分
本発明品(実施例 1)	1 3 0	1 9.9	2 2 9.0	2 0 4.6	8 分

× : 固化せず。

【 0 0 5 4 】

上記吸油量、比表面積、オレイン酸吸着量、人工皮脂吸着量及び脂肪酸固化能（オレイン酸固化開始時間）の結果から評価すると、本発明品（実施例 1 の粉体）は吸油量面では、一般にメインフィラーとして配合される粉体の吸油量の 9 0 - 1 2 0 よりも若干高めであるが、オレイン酸の吸着量が高く、また比表面積当りのオレイン酸吸着量や、人工皮脂の吸着量にも優れ、更に固化開始時間も短いのは本発明品である。更に、従来品である酸化亜鉛被覆物（特開平 9 - 2 2 7 7 9 2 号公報参照。）よりもオレイン酸吸着量や人工皮脂の吸着量、固化開始時間共に明らかに優っているのが本発明品であることが分かる。

【 0 0 5 5 】

（２）本発明品に対する各油脂の吸着量

本発明品に対する各油脂の吸着量を測定し、その結果を下記表 2 に示す。

【 0 0 5 6 】

【表 2】

油 脂	吸着量 m g / g
トリ-2-エチルヘキサンガリセリル	1 8 . 4
ジオレイン酸グリセリル	3 5 . 2
O.D.O. (日清製油製)	2 4 . 4
オレイン酸オクチルドデシル	2 0 . 9
メチルポリシロキサン*	1 1 . 8
イソステアリン酸	4 2 . 5
オレイン酸	2 2 9 . 0
スクワレン	2 4 . 0

* : 5 0 センチストークス

【 0 0 5 7 】

上記吸着量の測定結果、本発明品は遊離脂肪酸を特異的に吸着し、中でも不飽和脂肪酸を選択的に吸着するが、飽和脂肪酸やトリグリセライドやジグリセライド、エステル等にも吸着力を有し、皮脂の吸着力に極めて優れてることが分かる。

【 0 0 5 8 】

(3) 本発明品の人工皮脂（三好化成製）と疑似汗成分混合系での吸着量

本発明品（実施例 1）について人工皮脂の吸着量を測定し、その組成による比較を行い、その結果を下記表 3 に示す。尚、試料 5. 0 g を用いて試験を行った。

【 0 0 5 9 】

【表 3】

疑似汗成分 g	人工皮脂 g	人工皮脂の吸着量 mg / g
2 0	8 0	2 2 0.9
5 0	5 0	2 3 6.6
8 0	2 0	2 4 1.1

【 0 0 6 0 】

(疑似汗成分組成)

精製水：98%；尿素：0.5%；食塩：1.0%；及びブドウ糖：0.5%。

【 0 0 6 1 】

人間の皮膚には平均すると 1 cm^2 当り 100 - 150 個の割合で汗腺が存在する。汗腺はエクリン腺とアポクリン腺に大別されるが、その両方を合せると分泌量は静止状態で 1 日 300 - 500 cc、通常の生活環境下では 2000 - 3000 cc である。メイクアップを施した顔も例外ではなく、皮膚表面から揮散、蒸発していく水分ではなく、皮膚上に留まった汗と分泌された皮脂とメイク膜の関わりは実際に極めて重要な問題である。その結果、汗と皮脂の混合系において本発明品は多量に汗をかいても人工皮脂の吸着量は低下せず、寧ろ吸着量を高める結果が得られ、汗により皮脂の吸着量が妨げられることはなかった。更には、試料に対し 20 倍量の分泌物の実験から皮脂と汗の割合が 8 / 2 - 5 / 5 の範囲では w / o 等の全く流動性のない均一な固体膜を作る。実際には、この固体膜中にメイクアップ化粧料中の顔料や粉体を取り込まれる形になり、更に皮脂中の遊離脂肪酸が本発明品に吸着されることにより皮脂の融点低下が抑えられ、より固体分の多い固体膜を形成し、より強固な化粧膜が形成され、優れた化粧持ち効

果をもたらしていると推測される。

【0062】

(4) 透明感の比較

分光光度計により分光反射率を測定し透明感を測定した。測定方法は前述した通りで、測定機器には日本電子製の分光光度計SZ-Σ90を用いた。

【0063】

比較のため、透明感があり、使用感に優れているため、パウダー製品に汎用されているセリサイトを対照品として使用した。その結果を図1a及び図1bに示した。肌に直接塗布した場合（図1a参照。）、本発明品（実施例1）による塗布では、肌の分光反射曲線に極めて良く近似したパターンを示すと共に400-600mmの波長領域で僅かに反射率が高く、透明感が高く、肌を明るく仕上げる効果がある。それに比して、セリサイトの塗布では、反射率が全体的に高く、相対的に白味を強く感じるものであり分光曲線も肌の分光曲線とは少し異なっている。下地に乳液を塗布する場合（図1b参照。）、略肌と同一の反射率で同一分光曲線を示し素肌表面の同一反射分光を持ち、素肌そのものの肌目を細かく見せる効果が見られた。

【0064】

(5) 動摩擦係数の測定

測定方法は前述した通りであり、測定機器にはカトーテック社製の摩擦感テスターKES-SEを用いた。試料として、本発明品（実施例1）、実施例1の基体として使用しているセリサイト、セリサイトと同一素材という点でセリサイトと略同一化学組成を有するマイカ、更には本発明品が複合素材であることから複合素材を2種選択して測定した。

【0065】

その結果を下記表4に示す。本発明品はセリサイトよりも僅かに動摩擦係数が高いが、その違いは極僅かであり、略同等の滑りである。それに対してマイカや複合粉体は明らかに本発明品（実施例1）より動摩擦係数が大きく滑りが悪い。本発明品は、一般フィラー（充填材）として多量に用いられる使用感の良いセリサイトと略同等の動摩擦抵抗を示すことから複合素材ではあるが、一般に繁用さ

れる機能性複合材料とは異なり、本発明品を化粧料中に多量配合しても使用感が損なわれないことが十分に予測される。

【 0 0 6 6 】

【表 4】

試 料	MIU $\times 10^{-1}$
本発明品	2.23
セリサイト	2.18
マイカ	2.85
複合粉体 (A) *1	3.30
複合粉体 (B) *2	2.96

* 1 : 水酸化アルミニウム被覆セリサイト

* 2 : 二酸化チタン被覆セリサイト

【 0 0 6 7 】

(6) 抗菌力試験と試験結果

(試験概要)

検体を任意濃度に添加した液体培地に大腸菌又は黄色ブドウ球菌の菌液を添加し、35℃で18-24時間振とう培養後に菌の発育の有無を確認し、その結果を下記表5に示した。

【 0 0 6 8 】

1. 試験方法

1) 試験菌

Escherichia coli IF0 (大腸菌)

Staphylococcus aureus IF0 13276 (黄色ブドウ球菌)

【 0 0 6 9 】

2) 試験用培地

MHB培地 : Mueller Hinton Broth [DIFCO LABORATORIES INCORPORATED]

SCDLP培地 : SCDLP寒天培地 [日本製薬製]

【 0 0 7 0 】

3) 接種用菌液の調製

継代培養した試験菌をMHB培地に接種し、35℃で18-20時間培養後、菌数が約 10^4 /mlとなるようにMHB培地で希釈し、接種用菌液とした。

【0071】

4) 感受性測定用培地の調製

検体を乾熱滅菌(180℃、60分間)した後、MHB培地を用いて検体の10.5及び4W/V%懸濁液を調製した。更に、4W/V%懸濁液を良く攪拌しながらMHB培地で順次2倍希釈し、検体の2倍段階希釈液を調製した。調製した懸濁液及び各2倍段階希釈液を10mlずつL字型試験管に分注し、感受性測定用培地とした。

【0072】

5) 培養

感受性測定用培地に接種用菌液0.1mlを接種し、35℃で18-24時間振とう培養した。

【0073】

6) 判定

本試験の感受性測定用培地は、検体添加による濁りのため肉眼観察での菌の発育の有無の判定ができなかった。そこで、培養終了後の感受性測定用培地の生菌数を測定(SCDLPA培地、35℃、2日間培養)し、1ml当たりの菌数が 10^6 以下の場合を「菌の発育を認めず」、菌数が 10^6 以上の場合を「菌の発育を認める」とした。

【0074】

【表5】 検体を添加した培地における試験菌の発育の有無*

試験菌	検体添加濃度 (%)							
	0.125	0.25	0.5	1	2	4	5	10
大腸菌	+	+	+	-	-	-	-	-
黄色ブドウ球菌	+	-	-	-	-	-	-	-

－：菌の発育を認めず； ＋：菌の発育を認める

*：35℃、18～24時間振とう培養

【0075】

(7) 使用による効果の比較

粉体（本発明品；実施例1）の塗布と素肌の5時間後の比較を写真撮影とビデオマイクロスコープとにより評価した。その結果を図2及び図3に示す。撮影による比較（図2参照。）では素肌（図2a）の場合に明らかに顔面がギラギラと光っていたのに対し、本発明品を塗布（図2b）した場合、その「てかり」は極めて抑えられていた。また、ビデオスコープでの評価（図3参照。）では、素肌（図3a）の場合には、皮溝に近い部分に皮脂がたまり光っているのに対し、本発明品を塗布（図3b）した場合、粉体が皮膚表面に均一に付着していて、化粧くずれしている状態が観察できなかったのも、本発明品による化粧効果が明らかに優れていることが分かる。

【0076】

(8) 脱臭効果試験と試験結果

(試料)

検体として実施例1で製造した粉体を使用し、比較のために対照品としてセリサイト（平均粒子径：8 μ m、板状）を使用した。

【0077】

(脱臭成分)

アンモニア、酢酸及びメチルメルカプタンについて脱臭効果の試験を行った。

【0078】

(試験概要)

検体及び対照品、各1gをそれぞれにおい袋に入れ、空気3Lを封入した後、ガス濃度が約500ppmとなるようにアンモニアを添加し、経時的に袋内のガス濃度を測定した。また、酢酸（約50ppm）及びメチルメルカプタン（約50ppm）についても同様に試験を行った。

【0079】

1. 試薬及び器具

におい袋：(有)ミヤコビニル加工所製；アンモニア水（28%、特級）：小宗化学薬品(株)製；酢酸（特級）小宗化学薬品(株)製；メチルメルカプタン：メチルメルカプタンナトリウム溶液（15%）に希硫酸を加えて発生させたガス使用；及びガス検知管：(株)ガステック。

【0080】

2. 操作

試料として検体及び対照品各1gをそれぞれにおい袋（25cm×40cm）に入れ、ヒートシールを施した後、空気3Lを封入し、ガス濃度が約500ppmとなるようにアンモニアを添加した。これを室温下に放置し、0.5、1、3、6及び24時間後にガス検知管により袋内のガス濃度を測定した。また、酢酸（約50ppm）については測定時間を2、5及び10分後に、メチルメルカプタン（約50ppm）については測定時間を10分後として同様に試験を行った。尚、試料を入れずに（試料無し）同様な操作を行い、これを空試験とした。

【0081】

(試験結果)

それぞれ、アンモニア、酢酸及びメチルメルカプタンについての試験結果を表6～8に示した。

【0082】

【表6】アンモニア（単位：ppm）

試料	経過時間 (h)				
	0.5	1	3	6	24
実施例1	160	160	130	110	80
対照品	350	350	310	290	180
無し (空)	490	490	450	410	300

初期条件：ガス濃度 約500ppm

【0083】

【表 7】酢酸（単位：p p m）

試 料	経過時間 (m i n)		
	2	5	1 0
実施例 1	2	1	<1
対照品	7	7	7
無し (空)	5 0	5 0	5 0

初期条件：ガス濃度 約 5 0 p p m

【0 0 8 4】

【表 8】メチルメルカプタン（単位：p p m）

試 料	経過時間 (m i n)
	1 0
実施例 1	<1 0
対照品	5 0
無し (空)	5 0

初期条件：ガス濃度 約 5 0 p p m

【0 0 8 5】

以上の表 6 ～ 8 の結果から、本発明の粉体には優れた脱臭効果、特に不快な臭いを発する体臭（異常な体臭）成分を脱臭する優れた効果を有していることが分かる。

【0 0 8 6】

（実施例 3）パウダーファンデーションの製造

下記組成によりパウダーファンデーションを製造した。

【0 0 8 7】

ファンデーション組成

成 分		重量部
粉体	シリコーン処理タルク	8.38
	シリコーン処理セリサイト	21.24
	本発明品（実施例1）	19.76
	シリコーン処理マイカ	7.00
	シリコーン処理酸化チタン	12.00
	ポリエチレン粉末	13.00
	メチルパラベン	0.20
	シリコーン処理弁柄	1.37
	シリコーン処理黄酸化鉄	3.29
	シリコーン処理群青	0.32
	シリコーン処理鉄黒	0.12
油剤	トリ-2-エチルヘキサン酸グリセリル	3.00
	スクワラン	1.50
	非イオン界面活性剤	0.30
	d- δ -トコフェロール	0.02
	メチルポリシロキサン*	8.50

*：20センチストークス

【0088】

（製法）

粉体成分をヘンシェルミキサーで3分間混合した後、取り出し直径0.5m/m ϕ のスクリーンを用いて粉砕した。この粉砕物をヘンシェルミキサーに移動しこれに油剤成分を加えてコーティングを行った。1.0m/mのヘリンクボーンのスクリーンを用い、粉砕機を使用して粉砕した。この粉砕物を金型に詰め加圧成形しパウダーファンデーションを得た。

【0089】

（実施例4）オレイン酸及び人工皮脂の吸着量

前記実施例3で得られたパウダーファンデーションについてオレイン酸及び人

工皮脂の吸着量を測定し先行商品と比較した。その結果を表 9 に示す。

【 0 0 9 0 】

【表 9】

試 料	オレイン酸吸着量 (m g / g)	人工皮脂吸着量 (m g / g)
本発明品 (実施例 3)	1 2 7.5	1 2 6.3
先行商品 (A)	7 7.2	5 4.5
先行商品 (B)	2 8 9.7	7 0.4
先行商品 (C)	6 6.9	6 3.9
先行商品 (D)	8 6.6	9 6.6

【 0 0 9 1 】

オレイン酸と人工皮脂の両方の吸着量に高い値を示したのは本発明品 (実施例 3) であった。遊離脂肪酸のみを特異に、選択的に吸着するのは先行商品 (B) と本発明品の 2 種であった。また、人工皮脂のように、ドリグリセライドやジグリセライド、遊離脂肪酸、スクワレン等、各種の物質の混合物系では本発明品が明らかに先行商品よりも優れていることが分かる。

【 0 0 9 2 】

(実施例 5) 使用性評価

実施例 3 で得られたパウダーファンデーションについて評価を行った。対照品 (比較例 1) として、実施例 3 の組成において使用する粉体成分のうち、実施例 1 の粉体を全てシリコーン処理セリサイトに置き換えて、それ以外は何ら変更することなく実施例 3 に基づいて製造したパウダーファンデーションを用いた。評価方法については、専門パネル 6 名が実使用し、使用後下記の評価項目について下記基準を用いて 5 段階評価で行った。

【 0 0 9 3 】

	1	2	3	4	5
化粧持ち		悪い	⇔	良い	
透明感		ない	⇔	ある	
のび		悪い	⇔	良い	
仕上りの美しさ		美しくない	⇔	美しい	
密着性		ない	⇔	ある	
つきの均一性		悪い	⇔	良い	

(評価基準)

【 0 0 9 4 】

(評価結果)

評価項目	実施例 3	比較例 1
化粧持ち	4.9	1.1
透明感	4.2	2.2
のび	3.6	3.6
仕上りの美しさ	4.8	2.7
密着性	4.6	2.6
つきの均一性	4.5	3.8

【 0 0 9 5 】

(実施例 6) 写真撮影等による化粧持ち評価

本発明品（実施例 3）パウダーファンデーションについて、写真撮影及びビデオマイクロスコープによる化粧持ちの評価を行った。

【 0 0 9 6 】

(1) パウダーファンデーションを顔に塗布し、5 時間経過後の化粧持ちの様子をデジタルカメラで撮影した。前記実施例 5 で調製した比較例 1 のパウダーファ

ンデーション（本発明の粉体不使用）と比較した結果を図 4 に示している。

【 0 0 9 7 】

この結果から、窓際においてもライトの下でも何れも、比較例 1 の製品（図 4 b、図 4 c）による化粧は皮脂でキラキラした「てかり」が見られるのに対して本発明品については、何れも自然に見え、化粧持ちが優れていることが分かる。

【 0 0 9 8 】

(2) パウダーファンデーションを顔に塗布し、5 時間経過後の化粧持ちの様子をビデオマイクロスコープ（倍率×200）で撮影した。前記比較例 1 のパウダーファンデーションと比較した結果を図 5 に示している。

【 0 0 9 9 】

この結果から本発明品が化粧持ちに優れていることが分かり、5 時間経過後でも、本発明品による化粧では粉体がきれいに皮膚表面に付着しているのに対し、対照品では皮脂により化粧がかなりくずれ、皮丘に粉体無く、皮溝に落ち、更には皮脂により「てかり」も見られる。

【 0 1 0 0 】

（実施例 7）アンダーメイクアップ乳液

下記組成によりアンダーメイクアップ乳液を製造した。

【0101】

成 分		重量部
油相	スクワラン	4.0
	オクタン酸セチル	5.5
	ホホバ油	1.5
	セタノール	0.6
	d- δ -トコフェロール	0.02
	モノオレイン酸グリセリン	0.2
	モノステアリン酸グリセリン	0.5
	P.O.E.ベヘニルエーテル	1.6
水相	カルボキシビニルポリマー	0.15
	グリセリン	17.0
	メチルパラベン	0.3
	キサンタンガム	0.05
	水酸化カリウム	0.09
	本発明品（実施例1）	5.0
	精製水	63.49

【0102】

（製法）

油相の成分混合物を80℃に均一に溶解させた。次に、本発明品（実施例1の粉体）を均一に分散させた水相の成分混合物を80℃に加温し、これを、均一に溶解させた油相に加えて80℃で乳化した。10分間、80℃に保存したした後、50℃まで冷却してアンダーメークアップ乳液を得た。

【0103】

（使用性評価）

(1) 試料

対照品（比較例2）として、実施例7の組成において使用する水相の成分のうち、本発明品（実施例1）の粉体を全て精製水に置き換えて、それ以外は何ら変

更することなく実施例 7 に基づいて製造したアンダーメイクアップ乳液を用いた。

【0104】

(2) 使用方法

本実施例 7 で製造されたアンダーメイクアップ乳液に前記比較例 1 のパウダーファンデーションを使用した場合と、比較例 2 の対照品（アンダーメイクアップ乳液）に前記比較例 1 のパウダーファンデーションを使用した場合とで比較してアンダーメイクアップ乳液の評価を実施した。

【0105】

(3) 評価結果

評価方法については前記実施例 5 に従い同様に 5 段階評価で行った。結果を表 10 に示す。この結果から、本発明品がより優れていることが理解される。

【0106】

【表 10】

評価項目	実施例 7	比較例 2
化粧持ち	4.5	1.0
透明感	4.0	2.1
のび	3.6	3.2
仕上りの美しさ	4.3	2.5
密着性	4.2	2.3
つきの均一性	4.0	3.0

【0107】

(実施例 8) 乳化型ファンデーションの製造

下記組成によりを乳化型ファンデーション製造した。

成 分		重量部
油相	ステアリン酸	0.75
	モノステアリン酸グリセリン	3.0
	モノステアリン酸ポリエチレングリコール	0.5
	モノステアリン酸 P.O.E.ソルビタン	1.5
	トリ-2-エチルヘキサン酸グリセリル	3.0
	セスキオレイン酸ソルビタン	0.3
	酸化チタン	5.0
	スクワラン	2.0
	オクタン酸セチル	8.2
	タルク	4.0
	弁柄	0.3
	黄酸化鉄	0.9
	紫色酸化鉄	0.3
水相	ポリエチレングリコール200	10.0
	カルボキシル化セルロースナトリウム	0.1
	キサントタンガム	0.05
	メチルパラベン	0.3
	トリエタノールアミン	0.7
	ケイ酸アルミニウムマグネシウム	1.0
	本発明品（実施例1）	10.0
	精製水	48.1

【0108】

(製法)

油相成分のうちタルク、酸化チタン及び有機顔料を均一に分散させた油相の成分混合物を85℃に加温した。一方、水相中の本発明品及びケイ酸アルミニウムマグネシウムを均一に分散させた水相の成分混合物も油相と同様に85℃に加温して、前記調製した85℃の油相分散体に水相を加え乳化した。乳化が終了した

時点で、乳化物を 1 5 分間 8 5 ℃ に保持した後、3 0 ℃ まで冷却し、乳化型ファンデーションを得た。

【 0 1 0 9 】

(使用性評価)

(1) 試料

対照品（比較例 3）として、本実施例 8 において水相成分のうち本発明品を精製水に置き換えて、それ以外は何ら変更することなく実施例 8 に基づいて製造した乳化型ファンデーションを使用した。

【 0 1 1 0 】

(2) 使用方法

美容パネル 9 名により対照品と本発明品を 1 日おきに交互に 2 週間連用した。その結果で評価を実施した。

【 0 1 1 1 】

(3) 評価結果

評価方法については前記実施例 5 に従い同様に 5 段階評価で行った。結果を表 1 1 に示す。この結果から、本発明品がより優れていることが理解される。

【 0 1 1 2 】

【表 1 1】

評価項目	実施例 8	比較例 3
化粧持ち	4.6	1.2
透明感	4.3	2.4
のび	3.7	3.7
仕上りの美しさ	4.5	2.6
密着性	4.4	2.5
つきの均一性	4.1	2.9

【 0 1 1 3 】

(実施例 9) 体臭消臭剤の製造

下記組成により体臭消臭剤を製造した。

体臭消臭剤の組成

成分 No.	成 分	重量部
1	シリコーン処理タルク	38.0
2	本発明品（実施例 1）	40.0
3	環状ジメチルポリシロキサン	20.0
4	オクタン酸セチル	1.0
5	トリ-2-エチルヘキサン酸グリセリル	1.0

【0114】

（製法）

上記成分 1 及び 2 をヘンシェルミキサーで混合した後、粉碎機で粉碎した。得られた粉碎物をヘンシェルミキサーに移し、油相成分である成分 3～5 の混合液を加えて、攪拌混合を行った。その後、粉碎機で粉碎し体臭消臭剤を製造した。

【0115】

（評価）

得られた体臭消臭剤について評価をすべく消臭試験を行った。

【0116】

（消臭試験法）

強い足臭を有すると自覚する健康な男性 8 名をパネルに選定し、実施例 1 で製造した複合体を配合した上記体臭消臭剤（本発明品）について試験を行った。靴下をはいた後靴を履きむれた状態で 3 時間経過後の状態を「使用前」とし、その時の足臭の程度について官能評価を行い、次に体臭消臭剤を足に塗布後同様に靴下をはいた後靴を履き 30 分～5 時間経過後の足臭の程度について同様に評価を行った。尚、試験は 4 日間にわたり毎日実施し、平均値を求めた。

【0117】

（評価基準）

足臭の程度について下記の 7 段階の基準に基づいて、0～6 の 7 段階で評価を行い 8 名の平均値（スコア）を求めた。

0：全く無い；

- 1 : 僅かに臭う ;
 2 : 少し臭う ;
 3 : 割合臭う ;
 4 : かなり臭う ;
 5 : 非常に臭う ; 及び
 6 : 極端に臭う。

結果を表 1 2 に示した。

【 0 1 1 8 】

【表 1 2】 評価結果

経過時間(本発明品塗布後)	スコア
3 0 分	0
1 時間	0
2 時間	0 . 4
3 時間	0 . 9
4 時間	2 . 0
5 時間	2 . 8
「使用前」(対照)	5 . 1

以上の試験結果から、本発明品の体臭消臭剤は消臭効果において極めて優れていることが分かる。

【 0 1 1 9 】

【発明の効果】

本発明によれば、遊離脂肪酸（特に不飽和脂肪酸）を特異的に吸着すると共に分泌する皮脂をも吸着、固化させ、固体膜を形成させることにより皮膚生理を阻害せず、素肌表面と同じ反射光曲線を持ち、素肌感を有し化粧持ち効果と抗菌効果に優れた化粧料に好適な粉体を提供する。更に、この粉体を使用しこのように優れた効果を有する化粧料や皮脂吸着剤も提供することができる。更に、本発明の粉体には体臭成分を吸着、固化或いは固定化する作用もあり、これを使用して体臭消臭剤を提供することもできる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

図 1 は、実施例 2 における透明感の比較のために分光光度計により分光反射率を測定した結果を図示したものである。試料；●：肌（試料無し）；■：セリサイト；▲：本発明品（実施例 1）。

図 1 a：肌に直接塗布、試料塗布量 $0.04\text{g}/58\text{cm}^2$ ；図 1 b：下地に乳液塗布、試料塗布量 $0.03\text{g}/58\text{cm}^2$ 。

【図 2】

実施例 2（使用による効果の比較）におけるデジタルカメラによる撮影写真である。

顔に粉体を塗布し 5 時間経過後の肌（顔）の様子をライト下で撮影した。

図 2 a：素肌、右顔；図 2 b：本発明品（実施例 1）、左顔。

【図 3】

実施例 2（使用による効果の比較）におけるビデオマイクロスコープ写真（倍率 $\times 200$ ）である（顔に塗布後 5 時間経過後に観察）。

図 3 a：素肌、右顔；図 3 b：本発明品（実施例 1）、左顔。

【図 4】

実施例 6 におけるデジタルカメラによる撮影写真である。

顔にパウダーファンデーションを塗布し 5 時間経過後の肌（顔）の様子を、窓際及びライト下で撮影した。

図 4 a：本発明品（実施例 3）使用、顔右、窓際；図 4 b：比較例 1 の製品使用、顔左、窓際；図 4 c：本発明品（実施例 3）使用、顔右、ライト下；図 4 d：比較例 1 の製品使用、顔左、ライト下；図 4 e：図 4 c と図 4 d の同時撮影、写真左側の顔（右顔）が本発明品を塗布。

【図 5】

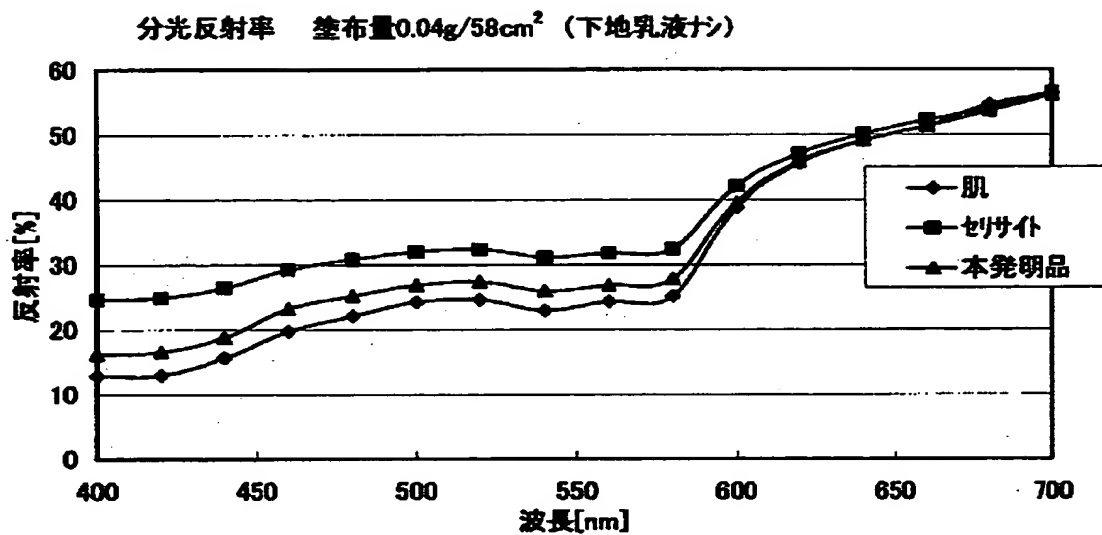
実施例 6 におけるビデオマイクロスコープ写真（倍率 $\times 200$ ）である（顔に塗布後 5 時間経過後に観察）。

図 5 a：本発明品；図 5 b：比較例 1 の製品。

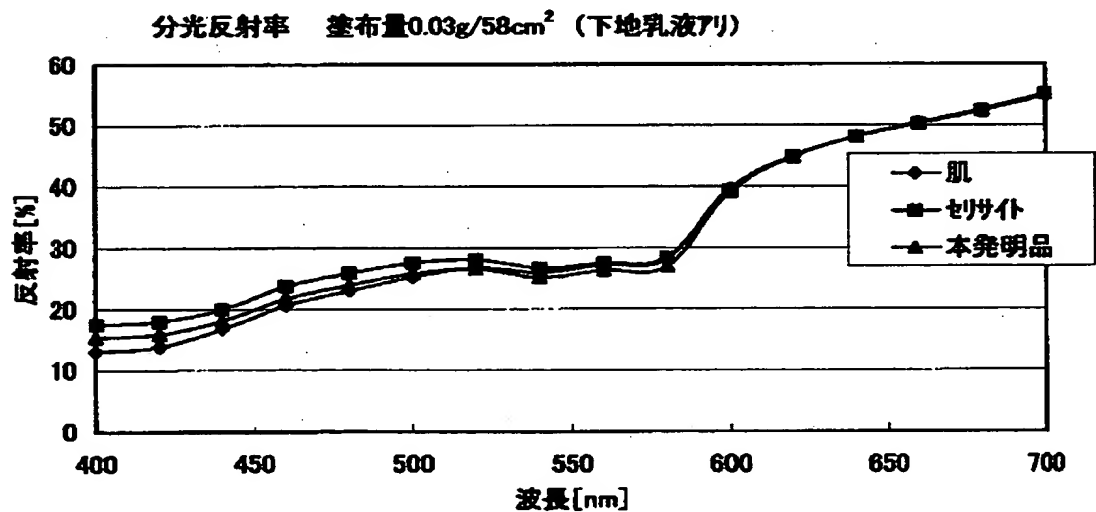
【書類名】 図面

【図 1】

(a)

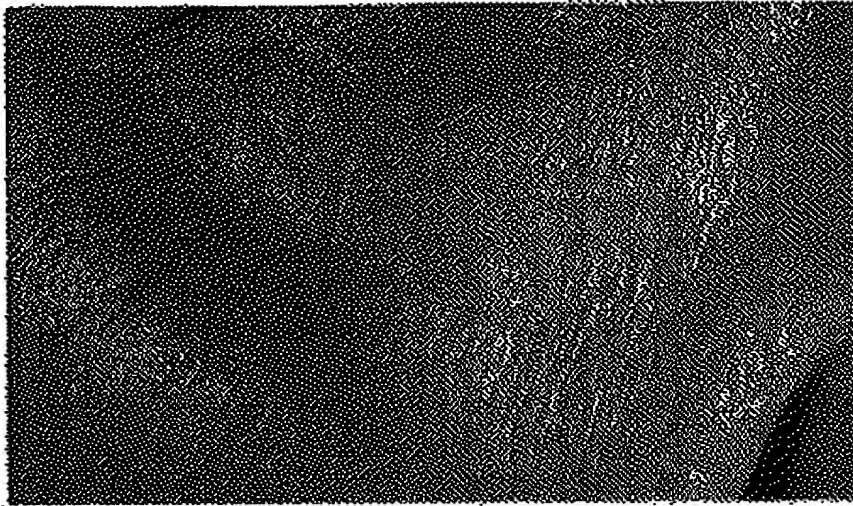


(b)

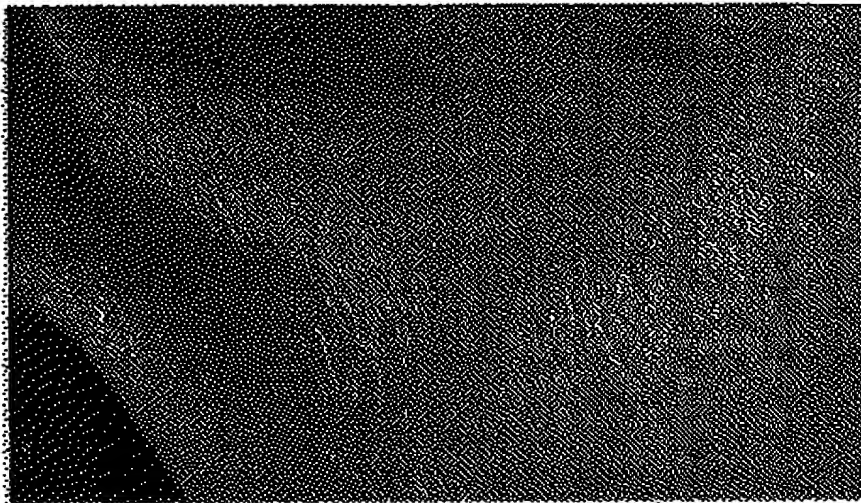


【図 2】

(a)

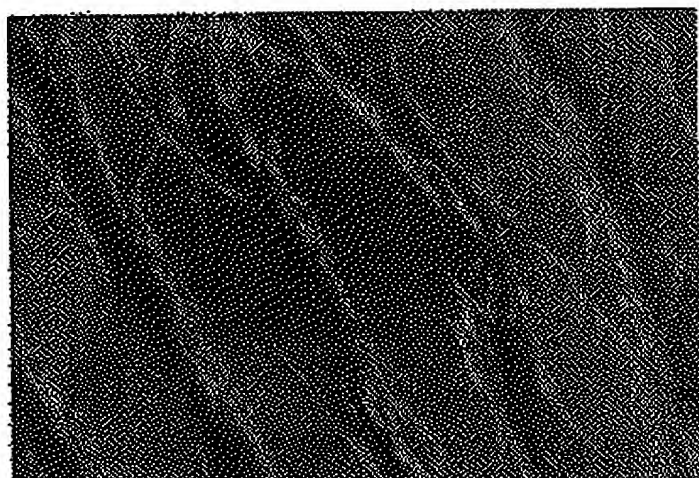


(b)

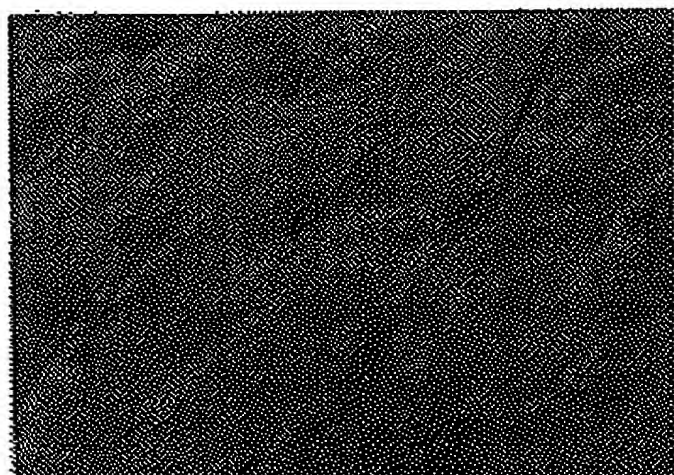


【図 3】

(a)



(b)

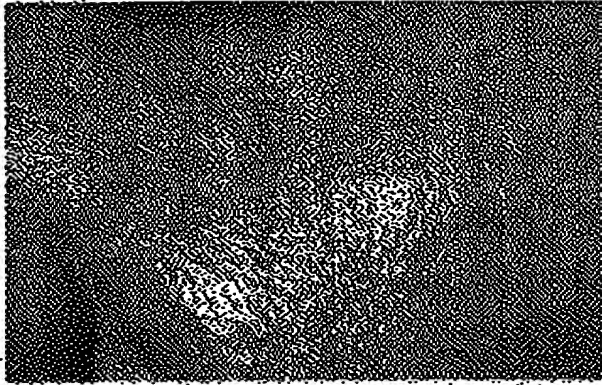


【図 4】

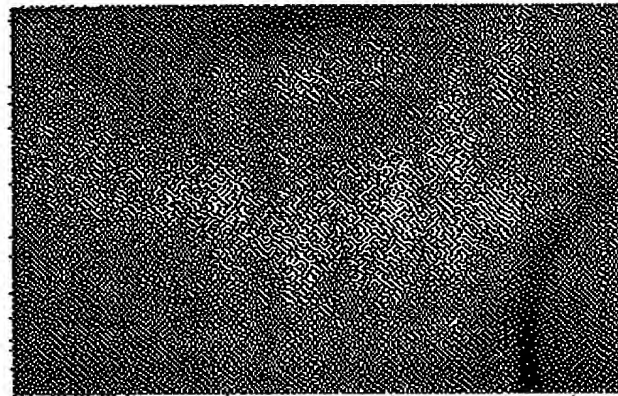
(a)



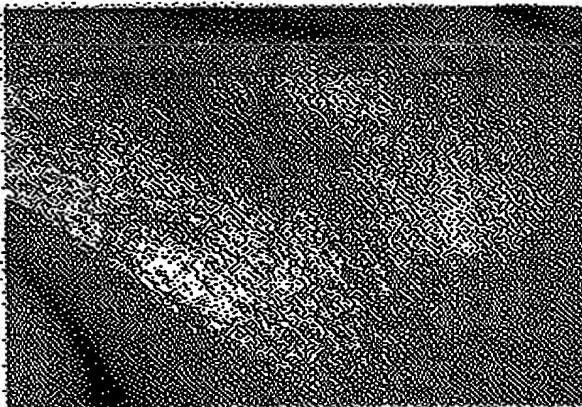
(b)



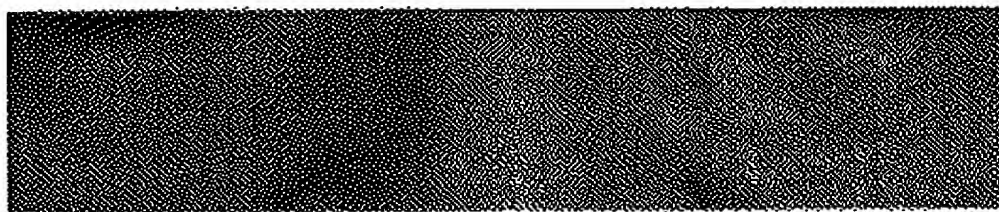
(c)



(d)

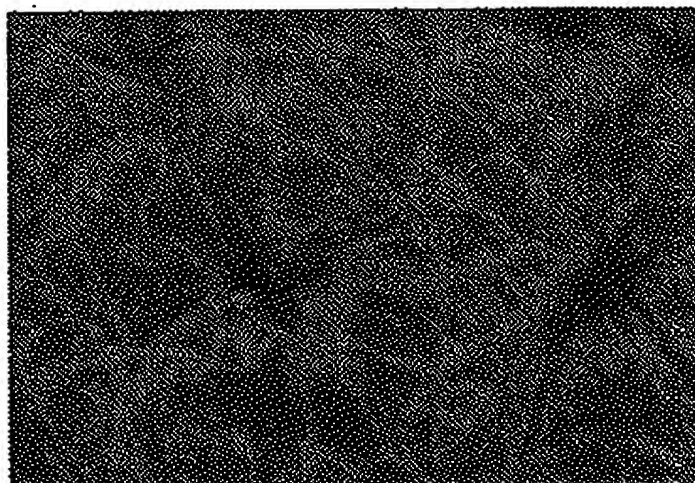


(e)



【図 5】

(a)



(b)



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】

遊離脂肪酸（特に不飽和脂肪酸）を特異的に吸着すると共に分泌する皮脂をも吸着、固化させ、固体膜を形成させることにより皮膚生理を阻害せず、素肌表面と同じ反射光曲線を持ち、素肌感を有し化粧持ち効果と抗菌効果に優れた化粧料に好適な粉体を提供する。

【解決手段】

化粧料の粉体に使用可能な基体と、ハイドロキシアパタイトと、酸化亜鉛とを含有する粉体、好ましくは該基体表面にハイドロキシアパタイトを被覆し、このハイドロキシアパタイトの被覆層に酸化亜鉛を固着することにより得られる粉体が上記課題を解決し化粧料に使用するのに好適である。この粉体は皮脂成分や体臭成分の吸着、固化或いは固定化にも優れ、化粧料以外に皮脂吸着剤、体臭消臭剤等の有効成分としても有用である。

【選択図】

なし

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [597137213]

1. 変更年月日 1997年 9月10日

[変更理由] 新規登録

住 所 埼玉県浦和市大字代山原ノ下705-1

氏 名 三好化成株式会社